

2. 特性の計測評価

2-3 磁気特性の計測と解析

2-3-2 磁気測定の実用：動的磁化測定(原理)

小野寺 礼 尚* 喜 多 英 治**

2-3-2-1 はじめに

2-3-2-1-1 交流磁気測定の実践にむけて

本講座(2-3 磁気特性の計測と解析)では材料の磁気的性質の概要を述べ、構造材料など、磁性材料以外の研究開発に携わるみなさんに磁化測定の基礎を紹介していました。前回(8号)の静的(直流, DC)磁化測定に続き、今回は動的磁気測定をテーマに、動的磁気測定の役割、測定装置の構成、データ解析について紹介します。誌面の都合上、今回は主として基本原理、次回(12号掲載予定)は実際の測定装置や測定手法と、2回に分けて紹介していきます。

静的(DC)磁気測定は、磁気モーメントの秩序状態や磁気変態、または、相変態に伴う磁気変態など、静的あるいは準静的な物質の磁気的性質を観測することを目的に行うため、バルク試料の測定により材料物性・物性物理など基礎研究で活用される場面が多いと考えられます。これらの物性は、磁場の変動に対して磁化が追従する速度が早く、瞬時に応答するとして、磁場の時間変化の影響を考慮する必要がないことを前提としてきました。前回2-3-1-3-4で紹介したVSMによる磁化測定⁽¹⁾を考えると、静的測定といいつつ、実際には計測の時間スケール(時定数)によって磁化曲線が影響を受けることを紹介しました。これは計測機器の時間的制約によるもので、測定対象の本質ではありません。ところが、本来の性質として磁場の変化の速度によって材料の応答が変化することがあります。また、主に磁場変化の周波数が高い領域で応用される軟磁性材料などでは、動作周波数での応答(後述する透磁率など)が材料の性質を表す指標の一つになるため、その周波数帯での特性評価が重要となります。また、磁性ナノ粒子のような試料の動的測定では、静的測定の前提

を覆す熱揺らぎの影響も観測されます。

動的磁気測定では静的測定とは異なり、時間変化する磁場を印加して計測対象の磁化などを評価します。この動的磁気測定という言葉は、広義には時間変化する磁場に応答する物質の磁気的性質の測定を意味します。時間変動する磁場には、強度が周期的に変化する矩形パルス波、三角波、正弦波などのほか、パルス強磁場のように単発で強い強度を作り出すものなど様々あります⁽²⁾。本稿では、その中でも正弦波で変動する交流(AC)磁場を用いた磁化測定に注目して紹介します。

磁化測定を始めるきっかけにもよりますが、交流の磁化測定を始める方は、前回紹介したような静的(DC)磁化測定をすでに研究手法として実践しているか、その知識がある場合が多いと思います。そのため、本稿では磁化測定の基礎を習得している方を読者として想定して説明を進めることにします。そうでない方々は是非、8号掲載の2-3-1「磁気測定の基礎：静的磁化測定」から読んでいただくと理解が深まるかと思います。

また、次回12号掲載予定の(測定手法)の最後には、前回と今回で取り上げることができなかった話題のうち、材料研究において用いられている測定手法・評価方法について簡単に紹介をしたいと思います。

2-3-2-2 動的磁気計測の意義

2-3-2-2-1 交流(動的)磁化測定と直流(静的)磁化測定

静的(DC)測定で対象とする体積の大きな試料では磁化は、磁場に対して瞬時に応答し、その環境(温度、磁場、圧力など)での安定状態である安定値⁽¹⁾に到達するとして扱ってきました。しかし、AC磁場に対する応答を考える場合、材料の本質的な物性は変わらずとも、振幅強度あるいは周波

* 茨城工業高等専門学校 国際創造工学科；准教授(〒312-8508 ひたちなか市中根866)

** 筑波大学名誉教授

Experimental Guides for Metallic Materials: 2. Measurement and Evaluation of Material Properties

2-3 Measurement and Analysis of Magnetic Properties: 2-3-2 Introduction of Advanced Magnetometry: Basic of Dynamic Measurement (Fundamental Principles); Reisho Onodera* and Eiji Kita**(*National Institute of Technology, Ibaraki College, Hitachinaka. **Emeritus Professor, University of Tsukuba, Tsukuba)

Keywords: dynamic magnetization measurement, dynamic hysteresis loop, magnetic relaxation, energy loss, soft magnetic materials, magnetic nano-particles

2024年8月19日受理[doi:10.2320/materia.63.710]

数によっては、磁場に対する応答に遅れを伴うことがあります。すると、それらは非平衡状態の物性として取り扱う必要があります。物質の本質的な値(安定値)を評価することはもちろん重要ですが、非平衡であっても実用環境(磁場振幅、周波数)において発揮される特性を評価することが応用上求められます。

ナノ粒子のような小さな体積を持つ強磁性試料では熱揺らぎの効果が磁気的性質に大きく現れます⁽³⁾⁽⁴⁾。一般的に強磁性材料は保磁力を持ちますが、厳密に言うと平衡状態(熱平衡状態)では保磁力がゼロになります。実際に強磁性体が保磁力を示すのは、磁化が部分的に反転して試料全体の磁化をゼロにするのに(観測時間に比べて)非常に長い時間がかかるためだと考えられます。ところが、試料の体積がナノスケールまで小さくなると磁化の反転確率が高くなってきます。これは、ハードディスクなどの1記録ビットが非常に小さい高密度磁気記録で、ビット反転が起こる確率が高くなる原因となります。さらに、強磁性体の体積が小さくなり磁化反転が頻繁に起こるようになる状態を超常磁性と呼びます。このような状態での動的磁化測定では熱平衡に至る過程を観測することになり、観測温度と周波数により磁化過程が大きく異なってきます。

以上のように、材料のAC磁化特性の評価は基礎研究としての価値が大きいものですが、その材料が実際に社会で利用される運用環境での性能評価に直接寄与することも重要です。特に、まてりあ62巻9号(2023年)で「EV化社会に向けたパワーエレクトロニクス用軟磁性材料研究」について特集されたように、今後のパワーエレクトロニクス分野の発展において軟磁性材料が果たす役割は非常に大きく、注目されていると考えます。そこで本講座では、軟磁性材料のAC特性を評価することも念頭に置いて説明を進めます。

電気回路中で使われるインダクタンス素子(インダクタ)の多くは軟磁性材料をコア(芯)としてコイルを巻いたものです⁽⁵⁾⁽⁶⁾。インダクタには、電圧変換に使われるトランス、電源回路における直流化や平滑化に利用されるリアクトル、チョークコイルなどの回路素子があります。

非侵襲のガン温熱治療(磁気ハイパーサーミア)の発熱体や、ドラッグデリバリーのキャリア、磁性粒子イメージングの造影剤などとして医療応用が期待されている磁性ナノ粒子は、AC特性に熱平衡の影響が大きく現れ、その運用環境に合わせて粒子のAC磁気特性評価が行われています。そのため、磁性ナノ粒子やその懸濁液の特性評価に関して、合わせて紹介します。

また、本稿で扱うAC測定の周波数は市販の装置が対応し

ている周波数帯に概ね一致するように商用周波数(50/60 Hz)から数 MHz までを中心に説明を行います。

2-3-2-2-2 交流磁場を用いる上で考慮すべき点

前述したように、印加磁場にAC磁場を用いることでDC磁化測定とは異なる特性を評価することができます。AC電流で励磁するため、インダクタンスが大きい電磁石やソレノイドコイルでは基本的にDC測定ほど磁場を印加することができません。したがって、測定によって得られるヒステリシスループの多くは図1に実線で示しているような、飽和していないマイナーループを評価することが多くなります。

2-3-2-2-3 交流磁化測定で評価する特性

磁場に対する磁化の線形応答係数としてDC磁化測定では磁化率 χ を導入しました。軟磁性材料のような交流動作の解析には透磁率 μ を用いることが多いため、これらの違いについて説明します。磁化率 χ は磁化が磁場に比例する場合(磁場の弱い原点近傍)には、 $M=\chi H$ と磁場 H と磁化 M を結ぶ比例係数として与えられます。一方、透磁率は $\mu=B/H$ で定義されます。材料内部に生じた磁束の密度 B は $B=\mu_0(H+M)$ と表されるので、 $B=\mu_0(1+\chi)H$ と書くことができ、この係数 $\mu_0(1+\chi)$ が透磁率 μ となります。この透磁率を真空の透磁率 μ_0 との比で表したものが比透磁率 $\mu_r=\mu/\mu_0$ です。これを用いると $B=\mu_r\mu_0H$ と表すことができ、比透磁率は $\mu_r=1+\chi$ で与えられます⁽⁷⁾。

図2に磁化曲線の例を示します。図2は印加磁場ゼロ、磁化ゼロの状態から磁場を印加し、初磁化曲線を示しています。原点と初磁化曲線上の任意の点を結ぶ直線の傾き(M/H)が磁化率となります。初磁化率 χ_i は原点付近での磁化率となり、最大磁化率 χ_m はこの直線の傾きが最大となった値になります。また、初磁化曲線上の任意の点の傾きは微分磁化率と呼ばれます。磁場による磁束が加わった磁束密度は $B=\mu_0(H+M)$ と表されるため、図2中の χ_i と χ_m に対応する透磁率は、それぞれ初透磁率 μ_i と最大透磁率 μ_m として与え

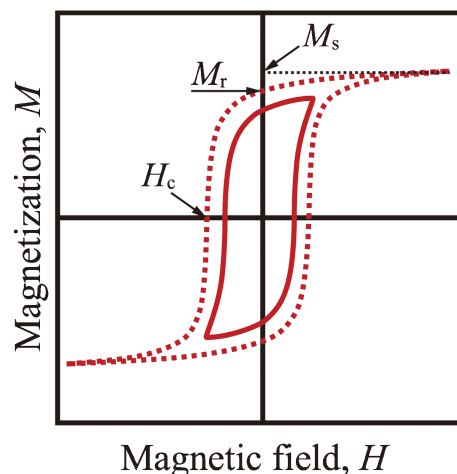


図1 ヒステリシスループ。

¹¹ ある環境で最もエネルギーの低い状態が平衡状態ですが、残留磁化や保磁力が存在する状態は、エネルギーの極小値をとっている状態であり、本質的には非平衡状態です。しかし、本来の平衡状態に達するまでには膨大な時間が必要となり、我々の考える時間スケールでは実質的な安定状態と言えます。そのため本稿ではこのような準平衡状態を安定状態と呼ぶことにします。また、この状態で示す物性のことを安定値と呼び、本質的な平衡値と区別します。

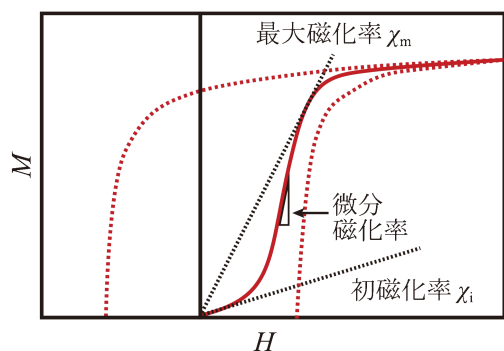


図2 初磁化曲線における磁化率.

られます。本稿では、軟磁性コア材料に関する話題については $B-H$, μ をもとに進めますが、磁性ナノ粒子の磁気特性に関連する話題では $M-H$, χ を用いて説明します。両者の違いについては以下でも説明します。また、ACでの磁化率(透磁率)の扱いについては、後ほどさらに詳しく説明を行います。

磁化率は、印加された磁場に対する磁化の応答のみを表します。一方、透磁率では材料に印加された磁場による磁束密度と、その磁場によって材料中に生じた磁化による磁束密度の和の応答として表します。これは回路素子として「コイル+コア」で考えると、コイルに通電した際に、コイルと磁化したコアのそれぞれがつくる磁束密度について合わせて回路素子の応答として考えることに対応します。これが軟磁性材料の特性を評価する際、 $B-H$ ループを評価する理由になり、磁化率より透磁率が重要な意味を持つことがわかります。

$B-H$ ループと $M-H$ ループの特徴の違いについては、図3を用いて説明します。 $M-H$ ループは磁場に対する磁化の追従の履歴を示しますが、 $B-H$ ループではそこに磁場の変化が重なる全磁束密度 B の変化として描かれます。したがって、材料の磁化が飽和した後は印加磁場の増分のみで B が変化し、 $H=0$ となる縦軸上では B は $\mu_0 M_r$ (残留磁化) と同じ値となります。もう一点、両者のループには保磁力に明確な違いがあります。 $M-H$ ループでの保磁力は、材料の磁化が飽和した後、残留磁化がゼロとなるまで印加した逆向きの磁場の値で定義されます。一方、 $B-H$ ループでの保磁力を B がゼロになる逆向きの磁場 H_{CB} と定義すると、第二象限では、 H_{CM} となったとき $M=0$ であるので、 $B=\mu_0(H+M)$ の左辺は負の値となります。したがって、 $B=0$ となる H_{CB} は H_{CM} より小さな磁場となります。このように、材料の磁化がゼロとなる磁化測定の保磁力 H_{CM} ($M-H$ ループ) と、「コイル+コア」の磁束密度がゼロとなる磁束測定の保磁力 H_{CB} ($B-H$ ループ) とが定義でき、それぞれのループで得られる保磁力の意味が異なっていることに注意する必要があります。

2-3-2-2-4 交流磁気特性評価の対象となる材料

2-3-2-2-4-1 軟磁性材料

軟磁性材料として最初に社会・産業で利用されたものは、

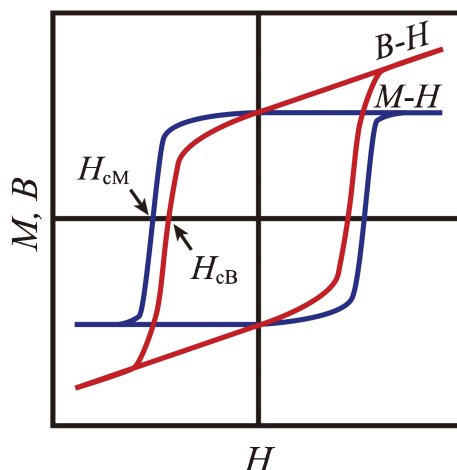


図3 $B-H$ ループと $M-H$ ループ.

50/60 Hz の商用周波数での変圧トランスのコア材料としての電磁鋼板で、100年以上前から利用されてきました。電気・電子回路においてラジオなどの信号用のインダクタやトランスは姿を消しましたが、スイッチング電源などのインダクタやリアクトルのコアとして、より高周波で動作する Mn 系酸化物のフェライトコアが用いられています¹²。特に、近年の電子機器の小型化や自動車の電動化に伴い、DC コンバーターの回路素子として求められているインダクタなど磁性素子の高周波化・大電流化(動作磁場 大)の要求が強まり、ナノ結晶系の軟磁性材料に対してコア材料としての期待が寄せられています。

軟磁性材料の AC 特性を表す指標として重要なものは、透磁率とエネルギー損失です。コアとしての特性には、飽和磁束密度 B_s や保磁力 H_c も関係しますが、これらは静的測定で評価することが一般的です。一方透磁率は、後述するようにトランスの変圧効率などに直接関係する AC 特性として周波数特性(どの周波数まで使えるか)の評価が求められます。変圧トランスのコアに用いる際には、透磁率が大きい材料が求められます。小さい磁場(少ない電力)で飽和する透磁率の大きな材料をコアに用いることで、コイルの巻数を節約でき小型化にもつなげることができるためです。またエネルギー損失($B-H$ ループの面積×動作周波数)は、動作中のコアの発熱の原因となります。コアの発熱で変換効率が低下するため、少ないエネルギー損失が求められます。

2-3-2-2-4-2 磁性ナノ粒子

AC 磁化特性を評価する対象として、軟磁性コア材料の他に超常磁性ナノ粒子を紹介します。磁性ナノ粒子は粒径が1～数10 nm の元来、強磁性を示す粒子を指します。強磁性あるいはフェリ磁性の磁気秩序を有していますが、内部に磁

¹² 電気回路やコイルについては、次の文献を参考にしてください。回路については文献(5)を、コイルやコアについては文献(6)が参考になります。

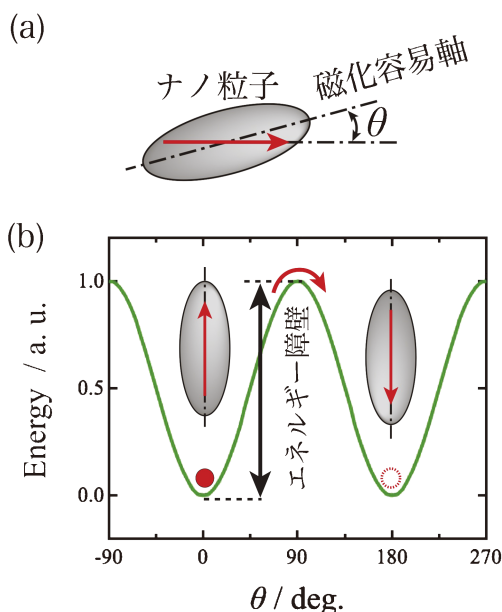


図4 (a) 一軸異方性を持つ磁性ナノ粒子と(b) 磁化の方向によるエネルギー。

壁が存在しない単磁区粒子¹³であるため、図4(a)のようにそれぞれが1つの大きな磁気モーメントを持つ粒子として振る舞います。しかし、粒子サイズが非常に小さくなると熱擾乱が異方性エネルギーを上回り、それぞれの粒子の磁気モーメントは無秩序に運動するようになります。この状態を超常磁性と呼びます⁽⁸⁾。通常、磁場を印加して磁気モーメントを $\theta=0^\circ$ に揃えたあと、磁場をゼロにするとそのままの方向で図4(b)中の赤丸に停留します。しかし、長い時間経過すると、磁化は図4(b)に示すようにエネルギー障壁を超え図4(b)中の赤丸と白丸のように $\theta=180^\circ$ にも等しく分布して全体の磁化はゼロ(熱平衡値)となります。

超常磁性の粒子に磁場を印加して生じる磁化 M の磁場依存性は、ランジュバン関数によって以下のように与えられます⁽⁹⁾。

$$M = Nm \left(\coth \xi - \frac{1}{\xi} \right), \quad \xi = \frac{mH}{k_B T} \quad (1)$$

ここで、 N : 単位体積あたりの粒子数、 m : 粒子の磁気モーメント、 k_B : ボルツマン定数、 H : 磁場、 T : 温度であり、この関数で与えられる磁化は熱平衡値 $\langle M \rangle$ です。磁場の小さい領域では磁化は磁場に比例し、磁化率は次式で与えられます。

$$\chi = \frac{\mu_0 N m^2}{3 k_B T} \quad (2)$$

この式の意味は、同じ数の磁性原子で構成される物質でも、

(集団で)運動する磁気モーメントの大きさ m が大きくなると磁化率が大きくなることを表しています。

たとえば1原子の磁気モーメントの大きさが $n\mu_B$ であるとして N 個の磁性原子があるとする、この磁性原子の集団の磁化率 χ_1 は式(2)を用いて

$$\chi_1 = \mu_0 \frac{N(n\mu_B)^2}{3k_B T} \quad (3)$$

と書けます。これは通常の常磁性の磁化率を表します。

一方、ナノ粒子1つが1000個の磁性原子から構成されているとすると、 N 個の磁性原子からつくられる粒子の数は $N/1000$ 個となります。この粒子内で磁気モーメントがひとかたまりとして運動するときの大きさは $1000n\mu_B$ となり、その磁化率 χ_{1000} は、

$$\chi_{1000} = \mu_0 \frac{N}{1000} \frac{(1000n\mu_B)^2}{3k_B T} = \mu_0 \frac{1000N(n\mu_B)^2}{3k_B T} = 1000\chi_1 \quad (4)$$

と表せ、磁化率 χ_{1000} は原子が1個ずつ熱揺らぎの影響を受ける常磁性の磁化率 χ_1 の1000倍(集団で運動する粒子内の原子の数)となります。

このように熱揺らぎを受ける磁気モーメントが大きい場合に、常磁性の性質が際だって表れる現象を超常磁性(Superparamagnetism)と呼びます⁽³⁾。超常磁性の性質として、巨大な磁化率に加えて、通常の常磁性体では極低温でしか観測されない磁化曲線の飽和が常温付近で観測されたり、次節で述べる緩和現象などが温度揺らぎの効果として観測されたりします。

熱の影響を大きく受けることが予想され、AC磁場を印加して得られる磁化は、後節(2-3-2-3-1-3)で紹介する超常磁性緩和によって必ずしも熱平衡値を示すとは限りません。この緩和現象により、ヒステリシスループにはエネルギー損失が生じ、熱エネルギーとして放出されます。その熱エネルギーをガンの温熱治療へと用いるのが磁気ハイパーサーミアです。

磁気ハイパーサーミアなど医療技術へ磁性ナノ粒子を利用するためにその交流応答の評価が求められています⁽¹⁰⁾。図5にはMRI造影剤として市販されている酸化鉄($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$)ナノ粒子懸濁液(Resovist[®])¹⁴を液体状態でACおよびDCで磁化測定し、得られたヒステリシスループを示しています⁽¹¹⁾。DC磁化測定によって得たヒステリシスループ(DC loop)はランジュバン関数に従うように振る舞い、保磁力を示さずループに囲まれた面積はほぼゼロです。一方、58 kHz、磁場振幅10, 20, 60 mTのAC磁場を印加して測定したループは振幅強度の増加と共に膨らみ、1ループごとにループの面積に比例したエネルギー損失があることがわかります。このように、磁気ハイパーサーミア用ナノ粒子の開発において、AC磁場に対する基礎磁気特性、発熱特性の磁場振幅・周波数依存性などの評価が求められています。

¹³ 磁場印加によって磁化していない強磁性体は、その内部で静磁エネルギーを最小にするために磁束が閉じるように磁気モーメントの秩序がいくつかの領域に区分されています。これを磁区と呼び、磁区ごとに磁気モーメントは秩序しています。磁区の境界を磁壁と呼びます。

¹⁴ Resovist[®]は酸化鉄ナノ粒子に表面修飾を施して水に分散させたもので、磁性流体とも呼ばれています。

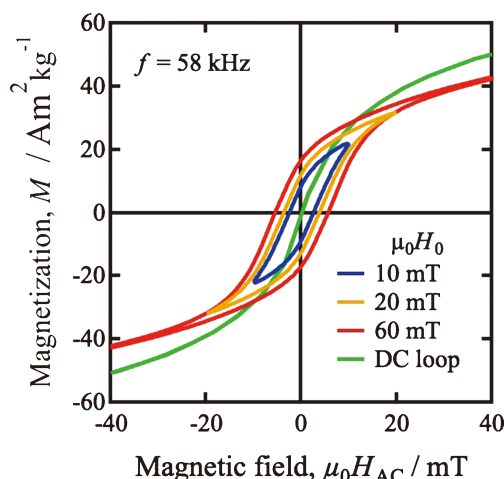


図5 酸化鉄ナノ粒子のAC, DC 磁化測定によるヒステリシスループ⁽¹¹⁾.

2-3-2-3 交流磁気特性の基本事項

2-3-2-3-1 ヒステリシスループと損失

AC 磁化特性はヒステリシスループの形状によって表せると言っても過言ではありません。磁場が小さい時は線形応答で近似でき、透磁率で軟磁性材料の性能や損失も表すことが可能です。ヒステリシスループが非線形の領域に入っても、損失はループ1周あたりの面積で得られます。さらに、この面積に測定周波数を掛けると1sあたりのエネルギー損失が得られます。この損失には、ヒステリシス損失、うず電流損失、熱緩和による損失など、いくつかの要因がありますが、次にその要因について紹介します。

2-3-2-3-1-1 ヒステリシス損失

図3に概念図で示すヒステリシスループを単純な、長方形あるいは平行四辺形と見ると、保磁力 H_c や飽和磁束密度 B_s が大きいほどループの面積は増加します。これは動的測定に限定したことなく、静的測定においても観察されるエネルギー損失となります。このように、物質の本質的な磁気特性が直接反映されるヒステリシスループの面積(損失)をヒステリシス損失と呼びます。

2-3-2-3-1-2 うず電流損失

この損失は、閉回路を鎖交する磁束が変化するときその変化を妨げる磁束をつくる誘導起電力が生じる、というレンツの法則を起源とする損失になります。動的磁化測定において、時間変動する磁場を印加すると試料には時間変動する磁束が生じます。この変化を妨げようと誘導起電力が生じ、誘導電流が流れ、エネルギーの損失となります。損失の存在は、ヒステリシスループの膨らみとして観察できます。

大概の試料には決まった閉回路が存在しないため、試料の表面において誘導電流は任意の閉回路で流れ、これをうず電流と呼びます。レンツの法則によって生じる起電力の大きさ

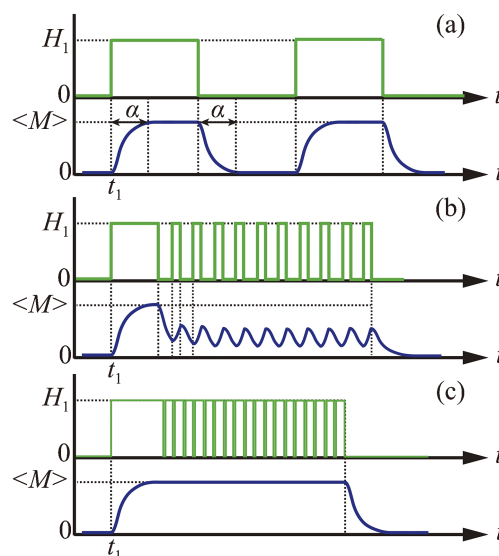


図6 磁化における緩和現象の概念図。特性時間 α に対して磁場のスイッチング周期が(a) 長い、(b) 短い、(c) 極端に短い場合。

は、ファラデーの電磁誘導の法則で与えられますが、その際に流れる誘導電流は、試料の抵抗率によって異なります。金属系の材料は抵抗率が小さいため流れるうず電流は大きく、ヒステリシスループに与える影響、すなわち損失も大きいですが、酸化物系の材料は抵抗率が大きいのでうず電流は小さく、損失も小さくなります。このうず電流損失は磁束の変化量に応じて生じるため、磁場の時間変化(AC 磁場の場合は周波数)が大きいほど大きくなります。

軟磁性のAC特性で鉄損として評価されているエネルギー損失には、ヒステリシス損失とうず電流損失が含まれています。

2-3-2-3-1-3 熱緩和

(A) 緩和の現象論

様々な原因によって時間変化する磁場に対して磁化の応答に遅れが生じます。これは緩和現象と呼ばれ、緩和現象を特徴付ける緩和時間は遅れの原因によって異なります。AC 磁場に対して磁化に位相遅れが生じるとヒステリシスループは膨らみ、エネルギーの損失が生じます。ここではまず、現象としての緩和を説明したのちに、緩和の原因となる物理現象について説明します。

図6は磁場の変動に対して、ある緩和時間に従って追従する磁化の変化を表しています。図6(a)のように、 $t=t_1$ で磁場が $H=0$ から $H=H_1$ へと変化したときに、磁化 M はすぐには変化せず、時間 α に従って熱平衡値 $\langle M \rangle$ に近づきます。変化が落ち着くまでの時間 α (後述する緩和時間 τ と同程度の時間) を特性時間と定義します。図6(a)の場合、磁場のスイッチング周期が磁化の特性時間 α より十分長い場合、磁化は遅れを伴いますが $\langle M \rangle$ へと収束します。一方で図6(b)のように、 α よりも早い周期で磁場のスイッチングが

生じる場合、磁化は熱平衡に至ることができません。また、図6(c)に示したように、特性時間に対して磁場のスイッチング周期が極端に短い場合、磁化は磁場に追従できずほとんど変化しないように見えます。

1秒間に生じる磁場のスイッチング回数は測定する磁場の周波数と考えられるため、測定周波数 f の逆数(測定時間)が特性時間 α に比べて十分長い($\alpha < f^{-1}$)と緩和の影響は小さく熱平衡値を観測できます。しかし、特性時間の方が長いと($\alpha > f^{-1}$)磁化の遅れが支配的になり熱平衡値ではなく非平衡値を観測することになります。このような緩和現象は、次で述べるようにヒステリシスループに現れることになります。

ヒステリシスを描いた際の面積はエネルギーの次元を持ち、損失に対応します。もしヒステリシスループが緩和の影響を強く受けるなら、この損失にも影響は及びます。例えば、磁場に対して磁化が線形応答する領域(線形近似領域)において、

$$H = H_0 \sin \omega t \quad (5)$$

で表される磁場が印加されるとき、材料の磁化 M (あるいは磁束密度 B)は緩和による位相遅れ(緩和時間)を伴って、

$$M = M' \sin \omega(t - \tau) \quad (6)$$

と表されるとします。磁化に位相遅れがない($\tau = 0$)とヒステリシスループは直線となります。図7は、磁場に対して緩和時間 τ を伴って追従する磁化で描いたヒステリシスループです。緩和時間の効果を角周波数 ω との積で表しています。 τ が長くなることで徐々にループが膨らみ始め、損失が生じていることがわかります。緩和時間 τ が長くなるほど損失は増加し、実際の磁性体では起こり得ませんが、最終的に位相が $\pi/2$ ずれるとループは正円となり、損失は最大となります。

(B) 緩和現象の要因

緩和現象は熱揺らぎを含む複数のメカニズムによって生じます。電子のスピンが担う磁気モーメントの反転については、ラーモア歳差運動が起源となっています。電子のラーモア歳差運動の周波数 f は印加磁場 $B_0 = \mu_0 H$ に比例して $f = \gamma B_0$ と表され、その比例係数 γ は磁気回転比と呼ばれていま

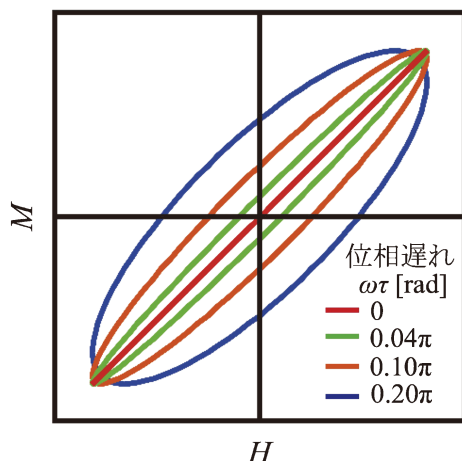


図7 線形応答領域におけるヒステリシスループの例。

す。 γ はおおよそ 2.8×10^{10} Hz/T となり、たとえば外部磁場 1 T(テスラ)の元では 28.0 GHz となります⁽¹²⁾⁽¹³⁾。この条件を満たす電磁波を照射すればエネルギー吸収が起こり、磁気共鳴と呼ばれています。

実際の磁性体を考える際、磁場が印加されていないときに、磁気モーメントが磁化容易軸から磁化困難軸の方向に向くために要するエネルギー(異方性エネルギー)を、磁場印加によって得られるとして換算した異方性磁場 H_k と呼びます。この異方性磁場の大きさによって共鳴が生じる周波数($f = \gamma B_k$, $B_k = \mu_0 H_k$)が変化します(自然共鳴)。この共鳴により緩和現象が磁気特性に顕著に影響を及ぼし、透磁率の減少などが生じてしまいます。(次回、強磁性共鳴で紹介します。)

磁性流体の様に磁性体が磁区構造よりも小さい単磁区サイズの粒子を含む場合、粒子内部の磁気モーメントの熱揺らぎによる反転(回転)に由来する緩和(ネール緩和)と、粒子の磁化容易軸に固定された磁気モーメントが粒子ごと印加された磁場の方向に回転する過程で生じる緩和(ブラウン緩和)の存在が挙げられます。

超常磁性状態にあるナノ粒子の緩和は古くから研究されています。ランジュバン関数を紹介した際に明らかなように、磁場が小さい線形領域であっても、磁化の応答は粒子の集団運動によって増幅されます。単磁区状態の磁性ナノ粒子における磁気モーメントの反転は、粒子内部の磁気モーメントがある磁場において一斉に回転するという Stoner-Wohlfarth モデル⁽⁸⁾⁽¹⁴⁾によって理解されています。この反転が起きる磁場は粒子の異方性エネルギーと磁場印加で与えられたゼーマンエネルギー¹⁵のつりあいで決定されます。この磁気モーメントの熱励起による反転が緩和現象として現れ、ネール緩和と呼ばれています。超常磁性粒子におけるネール緩和時間は簡単には $\tau \propto \exp(K_u v / k_B T)$ で表されます⁽¹⁵⁾。 K_u は異方性エネルギー、 v は粒子の体積です。粒子サイズや温度、磁場強度に依存しますが粒径 10 nm, 300 K, 100 mT での緩和時間は 1 ns 以下と見積もれます⁽¹⁶⁾。

ブラウン緩和とは、溶液中に分散している粒子に磁場が印加された際、その粒子(磁気モーメント)が磁場方向に整列する際の回転の遅れを指します。この回転においては、粒子が分散されている溶液の粘性が大きく影響を及ぼします。ブラウン緩和時間は粒子サイズや溶液の粘性で変化しますが、粒径 10 nm, 300 K, 100 mT, 293 K(20°C)の水程度の粘性で 100 ns ほどです⁽¹⁶⁾。これら2種類の緩和により、磁性ナノ粒子(から構成される磁性流体)の磁化には、位相遅れが生じヒステリシスループの膨らみ(エネルギー損失)が生じます。

2-3-2-3-2 磁化が線形応答する領域での緩和の取り扱い

ACの磁化、あるいは磁化率測定において生じる磁場に対する位相差 $\omega\tau$ はそれが生じる原因となった緩和現象の緩和

¹⁵ ゼーマンエネルギーは、磁場 $\vec{H}$ 中に置かれた磁気モーメント $\vec{M}$ に生じるエネルギー $-\vec{M} \cdot \vec{H}$ で表されます。

時間 τ と見ることができます。ランジュバン関数で与えられる超常磁性の磁化や、強磁性体の磁化は、原点付近の非常に弱い磁場に対して線形近似できます。ここでは、磁化の応答が線形近似できる場合の、磁化率と緩和時間の取り扱いについて説明します⁽¹⁷⁾。

磁化の熱平衡値 $\langle M \rangle$ は、正弦波で変動する磁場に線型応答すると近似して、虚数 j を使った磁場の複素表現 $H = H_0 e^{j\omega t}$ の実数部を用いると、

$$\langle M \rangle(t) = \text{Re}[\chi_0 H_0 e^{j\omega t}] = \chi_0 H_0 \cos \omega t \quad (7)$$

と表されます。ただし、 χ_0 は磁化率の熱平衡値、 H_0 は磁場の振幅です。また、位相差をもって追従する磁化(実際に観測される磁化) $M(t)$ も複素数で表すことができます。さらに、線形領域では磁化率 $\chi = M/H$ と扱うことができるため、実効的な磁化率 χ も複素数として $\chi = \chi' - j\chi''$ と表すことにします。これを複素磁化率と呼びます。式(6)で表した遅れを伴って磁場に追従する磁化は、

$$M(t) = \text{Re}[\chi H_0 e^{j\omega t}] = H_0 (\chi' \cos \omega t + \chi'' \sin \omega t) \quad (8)$$

と書けます。このとき、磁化 $M(t)$ の時間変化は、熱平衡値までの差 $\langle M \rangle(t) - M(t)$ を緩和時間 τ だけ要して追いつく際の傾きに等しいため、

$$\frac{\partial M(t)}{\partial t} = \frac{1}{\tau} (\langle M \rangle(t) - M(t)) \quad (9)$$

と表されることになります。計算過程は省略しますが、複素表現を用いて計算すると、磁化率は

$$\chi = \chi' - j\chi'' = \frac{\chi_0}{1 + j\omega\tau} \quad (10)$$

となり、実数部 χ' および虚数部 χ'' はそれぞれ、

$$\chi' = \frac{\chi_0}{1 + (\omega\tau)^2}, \quad \chi'' = \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \chi_0 \quad (11)$$

で与えられます。磁化に位相の遅れがない($\tau=0$)の場合、 $\chi = \chi' = \chi_0$ 、 $\chi'' = 0$ となります。このとき、内部エネルギーの変化量 ΔU はループ 1 周分の積分から、

$$\Delta U = \oint M dH = 2\mu_0 H_0^2 \chi'' \int_0^{2\pi/\omega} \sin^2 \omega t dt \quad (12)$$

となり、損失 P はこれに周波数 f をかけて

$$P = f \Delta U = \mu_0 \chi'' f H_0^2 \quad (13)$$

と与えられるため、 χ'' は損失を表していることになります。

緩和時間 $\tau = 1 \times 10^{-5} \text{ s}$ とした場合、式(11)で表せる磁化率(χ' , χ'')の周波数依存性は図8のようになります。 χ' は低い周波数では一定値をとり、 $f = f_r = 1/(2\pi\tau)$ に向かって減少を始め、高い周波数では 0 に近づきます。これはこの周波数以上では磁化が磁場に応答しなくなっていく様子を示しています。また χ'' は同じ周波数 f_r でピークを示します。このように磁化が線形近似できる弱い磁場範囲では、磁化率の中に緩和時間が取り込まれ、ヒステリシスループに反映されます。

緩和現象の要因については前述しましたが、いずれか特定の要因によって、選択的に生じるわけではありません。測定で得られるヒステリシスループには異なるメカニズムによる複数の緩和現象が同時に複合的に反映されることとなります。例として、磁性ナノ粒子に生じるネール緩和とブラウン

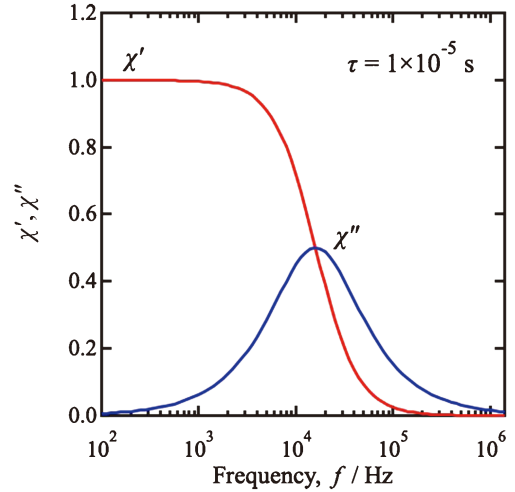


図8 式(11)より求めた磁化率の周波数依存性($\chi_0 = 1$, $\tau = 1 \times 10^{-5} \text{ s}$)。

緩和の2つの緩和は並行してヒステリシスループに影響を及ぼします。磁化反転過程に、ネール緩和とブラウン緩和など複数の緩和機構を有する場合、それぞれの機構によって生じる緩和が互いに独立ならば複合された緩和時間は、

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_B} + \frac{1}{\tau_N} \quad (14)$$

と表すことができます⁽¹⁷⁾。ここで、 τ_B : ブラウン緩和時間、 τ_N : ネール緩和時間です。それぞれの緩和時間の逆数 $1/\tau$ は、単位時間あたりの磁気モーメントの反転回数と考えることができます。このように複数の緩和機構は、複合された緩和時間として、AC 磁化率に寄与し、ヒステリシスループへと影響します。

2-3-2-3-3 複素透磁率

ここまで M - H ループの AC 測定で得られる複素磁化率と、緩和時間について説明を行ってきました。一方で、材料に生じた磁束密度 B と外部磁場 H は透磁率 μ で $B = \mu H$ と結ばれます。この透磁率 μ の複素表現について説明します⁽⁷⁾。図9(a), (b)には、なんらかの緩和により磁束密度に位相差が生じた(a) B - H ループ、(b) その B - H ループを構成している磁場 H と材料の磁束密度 B を示しています。 B - H ループが膨らみ、エネルギー損失を示しているということは、磁場 H と材料の磁束密度 B の間に図9(b)に示すような位相差 $\omega\tau$ が生じていることとなります。この H, B を複素平面上に表すと、図9(c)のように B は位相差 $\omega\tau$ で H に追従して複素平面上で回転していることとなります。ここで、 H, B の複素表現はそれぞれ、

$$H = H_0 e^{j\omega t}, \quad B = B_0 e^{j\omega(t-\tau)} \quad (15)$$

と表されます。透磁率は $\mu = B/H$ であるので、

$$\mu = \frac{B}{H} = \frac{B_0 e^{j\omega(t-\tau)}}{H_0 e^{j\omega t}} = \frac{B_0}{H_0} \frac{e^{-j\omega\tau} e^{j\omega t}}{e^{j\omega t}} = \frac{B_0}{H_0} e^{-j\omega\tau} \quad (16)$$

と表すことができ、透磁率は複素数表記で

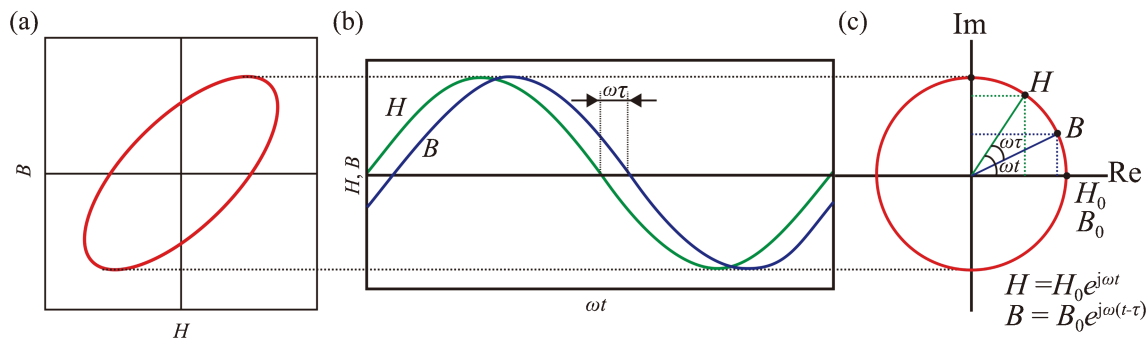


図9 (a) ヒステリシスループをつくる (b) AC 磁場 H と遅れ (位相差) をもって追従する磁束密度 B , (c) 複素平面を用いた表し方.

$$\mu = \frac{B_0}{H_0} e^{-j\omega\tau} = \frac{B_0}{H_0} \cos \omega\tau - j \frac{B_0}{H_0} \sin \omega\tau \quad (17)$$

と得られます. これを複素透磁率と呼び, 実部を μ' , 虚部を μ'' として, $\mu = \mu' - j\mu''$ と表します. 磁化率と同様に, 実部は DC 成分を, 虚部は損失を表していることになります.

$$\mu = \mu_0 \mu_r = \mu_0 (1 + \chi' - j\chi'') \quad (18)$$

から,

$$\mu' = \mu_0 (1 + \chi'), \quad \mu'' = \mu_0 \chi'' \quad (19)$$

となることがわかります. したがって, 磁化率および透磁率の両者に含まれる緩和時間 τ は共通の値として取り扱うことができます. これらは, 角振動数 $\omega = 2\pi f$ (f : 測定周波数) にそれぞれ依存することになります. 図10に実用材料である MnZn フェライトの透磁率の例を示します⁽¹⁸⁾. この周波数依存性は図8で見られる磁化率の周波数依存性と相似であり, 緩和現象が原因となっていると推測できます. 透磁率の低下が自然共鳴で起こると考えると共鳴周波数 $f = 10$ MHz で $\mu_0 H_k = 0.36$ mT ($H_k = 287$ A/m) と求まり, この物質 (Mn フェライト) の保磁力が小さいこと ($H_c \sim 50$ A/m) と辻褃が合います. また導電性が高く ($\sigma = 1$ Ωm), うず電流損失を無視することができないため, その影響も当然, 周波数依存性

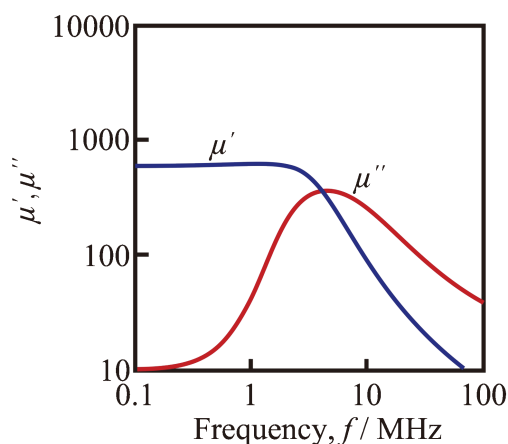


図10 MnZn フェライト (Amidon 33) における μ' , μ'' の周波数特性⁽¹⁸⁾.

に表れているはずです. このように様々な要因で周波数特性が決まっていることになり, 多様な計測で解析する必要があります.

また, 実部と虚部の比を取ると,

$$\frac{\mu''}{\mu'} = \tan \omega\tau = \tan \delta \quad (20)$$

と磁場と磁束密度の位相差を得ることができます. $\delta = \omega\tau$ といった $\tan \delta$ は損失係数と呼ばれ⁽⁷⁾, エネルギーの損失を表すパラメーターとなります.

2-3-2-3-4 非線形領域における磁化と磁化率測定

パワーエレクトロニクスの分野で用いられるインダクタには, スイッチング回路で平滑化に寄与するチョークコイルと呼ばれるものがあります. このコイルは, DC 電流が流れている上で AC 変調を重畳させて使うことが求められます. コイルのコアにとっては, DC 電流によって生じた磁場 (DC バイアス磁場) と, AC 変調で生じる DC 磁場に並行な変調磁場の2種類の磁場が印加される環境に相当します. また, このような使われ方をするコア材料は DC バイアス磁場に AC 変調を重ねても飽和しないよう, 透磁率が小さいことも求められます. コアの評価をする際には, 当然, 運用環境と同様の DC バイアス磁場を印加した上で, AC 測定を実施する必要があります. このようにしてコアの DC 重畳特性を評価することになります.

図11に損失のない球状の強磁性試料, DC バイアス磁場下の AC 磁場応答の概念図を示します. 図11(a)に示した DC バイアスがない AC 測定では, 原点を中心に振動する磁場 (緑) とそれに応答する磁化 (橙) の波形から, 一般的な原点对称なヒステリシスループが得られます. 一方で, 図11(b)に示したように DC バイアスを AC 磁場に平行に印加すると, その DC 磁場の強度に応じて磁場の振幅の中心がシフトします. 図11(a)に比べて振幅の小さい AC 磁場 H_{AC} が, DC バイアス H_{DC} を中心に振動しており (緑), その磁場に応答した磁化が橙色となっています. この2種類の波形によって描かれるヒステリシスループを, 図11(b)中の青色で描いています. このとき得られる磁化は, H_{DC} によって誘起されたものと, H_{AC} によって誘起されたものの2種類あります

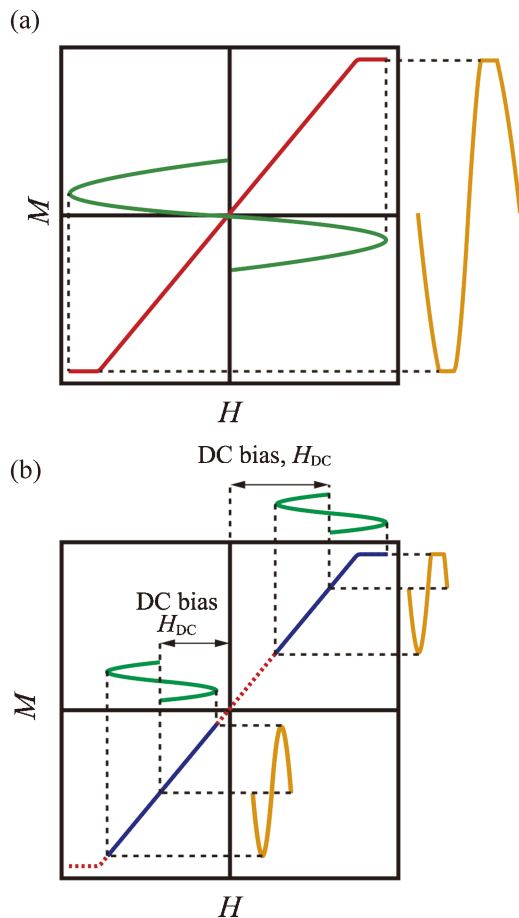


図11 ヒステリシスに緩和が生じない材料における、(a) DC バイアスのないヒステリシスループ、(b) DC バイアス下で測定したマイナーループの概念図。横軸に印加磁場の波形、縦軸には応答する磁場の波形を示す。

が、図11(b)のように、DC バイアスがないヒステリシスループ(赤破線)のマイナーループを描くことになります。このようにループに緩和(損失)が生じない場合には単純に磁場の加算性($H=H_{DC}+H_{AC}$)が成り立ちます⁽¹¹⁾。

大電流パワーインダクタにおいては、DC 電流(H_{DC})が大きく、飽和領域に接近した環境で運用されることがあるため、磁化が磁場に線形応答する領域を超えて、非線形応答する領域でコアを運用することになります。非線形応答領域での磁化は、

$$M=\chi_0 H+\chi_2 H^3+\chi_4 H^5+\cdots \quad (21)$$

と展開することができます。ここで、 χ_0 は線形応答で扱った磁化率の熱平衡値で、 χ_2 , χ_4 , ... は非線形磁化率と呼ばれるものになります。このような非線形成分に対して、緩和時間を包括して取り扱うモデルはいまだ確立されていません。また、次回紹介しますが、緩和(損失)が生じるループでは、

DC バイアス下のヒステリシスループの原点を定めることが原理的に困難であり、単純な加算性が成り立つか否かを評価することができません。このような背景もあり、非線形領域での磁化率や損失の評価の手法について、特に DC バイアス下での実験的評価手法の確立が求められています。

以上、交流磁気測定の役割や対象、実践する上で理解しておく必要のある基本原理をまとめました。次回は、実際の測定装置について、測定の特徴、データ処理などについて説明していきます。

文 献

- (1) 小野寺礼尚, 喜多英治: まてりあ, **63** (2024), 556-567.
- (2) 近桂一郎, 安岡弘志 編: 実験物理学講座 6 磁気測定 I, 丸善, (2000).
- (3) アンドレ・エルパン 著, 宮原将平, 野呂純子 訳: 磁性の理論 3, 講談社, (1983).
- (4) 日本磁気学会 編: 磁気便覧, 丸善, (2016)
- (5) 戸川治朗, スイッチング電源のコイル/トランス設計 第6版, CQ 出版社, (2023).
- (6) 山村英穂, 改訂新版 定本 トロイダル・コア活用百科, CQ 出版社, (2022).
- (7) 川西健次, 近角聰信, 櫻井良文 編, 磁気工学ハンドブック, 朝倉書店, (1998), 25.
- (8) 近角聰信: 強磁性体の物理(下)第15版, 裳華房, (2007).
- (9) 近角聰信: 強磁性体の物理(上)第23版, 裳華房, (2008), 20.
- (10) H. Mamiya and B. Jeyadevan: Sci. rep., **1** (2011), 157.
- (11) R. Onodera, E. Kita, T. Kuroiwa and H. Yanagihara: Jpn. J. Appl. Phys., **61** (2022), 065003.
- (12) 太田恵造, 磁気工学の基礎 II, 共立全書, (1973).
- (13) 宇野良清, 津屋 昇, 新関駒二郎, 森田 章, 山下次郎 共訳, キッテル 固体物理学入門 下 第8版, 丸善, (2008).
- (14) E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth: Philos. Trans. Royal Soc. A **240** (1948), 599.
- (15) J. M. Coey: Magnetism and magnetic materials, Cambridge University Press, (2010).
- (16) R. J. Deissler, Y. Wu and M. A. Martens: Med. Phys., **41** (2014), 012301.
- (17) R. Rosensweig: J. Magn. Magn. Mater., **252** (2002), 370-374.
- (18) Amidon 社, ferrite material, 33 material, <https://www.amidoncorp.com/specs/>.

★★

小野寺礼尚

2015年3月 東北大学大学院工学研究科博士課程修了
2015年4月 茨城工業高等専門学校 機械システム工学科 助教
2018年7月 茨城工業高等専門学校 国際創造工学科 准教授
専門分野: 磁気科学, 強磁場材料科学
◎高温・強磁場中の磁化測定装置の開発を行う。

磁場を用いた材料の組織制御の他, 交流磁化測定装置の開発に従事。

★★



小野寺礼尚



喜多英治